



①9 BUNDESREPUBLIK
DEUTSCHLAND



DEUTSCHES
PATENTAMT

⑫ Offenlegungsschrift
⑩ DE 44 05 614 A 1

⑳ Aktenzeichen: P 44 05 614.1
㉔ Anmeldetag: 22. 2. 94
㉕ Offenlegungstag: 24. 8. 95

㉖ Int. Cl. 6:
C 07 D 249/12
C 07 D 409/14
C 07 D 405/12
C 07 D 401/12
C 07 D 409/12
A 01 N 43/653
A 01 N 47/06
A 01 N 47/30
A 01 N 57/18
A 01 N 47/20
C 07 F 9/40
C 07 F 9/6518

DE 4405614 A 1

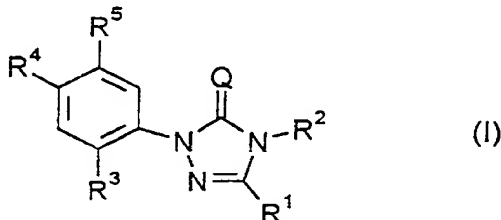
// C07D 521/00 (C07D 249/12,333:38,307:04,309:12,307:34,213:04)

㉚ Anmelder:
Bayer AG, 51373 Leverkusen, DE

㉛ Erfinder:
Linker, Karl-Heinz, 51377 Leverkusen, DE; Findeisen,
Kurt, Prof. Dr., 51375 Leverkusen, DE; Haas,
Wilhelm, Dr., 50259 Pulheim, DE; Schallner, Otto,
Dr., 40789 Monheim, DE; Wroblowsky,
Heinz-Jürgen, Dr., 40764 Langenfeld, DE; Dollinger,
Markus, Dr., 51381 Leverkusen, DE; Santel,
Hans-Joachim, Dr., 51371 Leverkusen, DE

㉜ Substituierte Triazolinone

㉝ Die Erfindung betrifft neue substituierte Triazolinone der
allgemeinen Formel (I)



in welcher
Q, R¹, R², R³, R⁴ und R⁵ die in der Beschreibung genannten
Bedeutungen haben, ein Verfahren zu ihrer Herstellung und
ihre Verwendung als Herbizide.

DE 4405614 A 1

Die folgenden Angaben sind den vom Anmelder eingereichten Unterlagen entnommen

BUNDESDRUCKEREI 06. 95 508 034/298

26/39

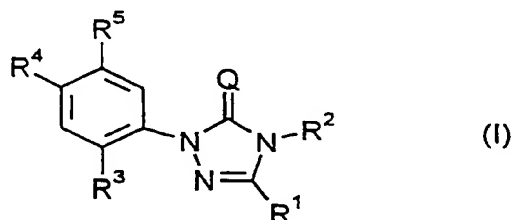
Beschreibung

Die Erfindung betrifft neue substituierte Triazolinone, Verfahren zu ihrer Herstellung und ihre Verwendung als Herbizide.

Es ist bekannt, daß bestimmte substituierte Triazolinone, wie beispielsweise die Verbindung 2-(4-Cyano-2,5-difluor-phenyl)-5-methyl-4-propargyl-2,4-dihydro-3H-1,2,4-triazol-3-on, herbizide Eigenschaften aufweisen (vgl. EP-A 370332).

Die Wirkung dieser bekannten Verbindungen ist jedoch nicht in allen Belangen zufriedenstellend.

Es wurden nun die neuen substituierten Triazolinone der allgemeinen Formel (I) gefunden



in welcher

Q für Sauerstoff oder Schwefel steht,

R¹ für Halogenalkyl steht,

R² für Wasserstoff, Amino, Cyano, Alkyl, Alkenyl, Alkynyl, Halogenalkyl, Halogenalkenyl, Halogenalkinyl, Alkoxyalkyl, Alkylidenimino oder für jeweils gegebenenfalls substituiertes Cycloalkyl oder Cycloalkylalkyl steht,

R³ für Wasserstoff oder Halogen steht,

R⁴ für Cyano oder Nitro steht, und

R⁵ für Isocyano, Thiocyanato, Sulfo, Halogensulfonyl, Alkylaminooxy, Dialkylaminooxy, Alkylidenaminooxy, Cycloalkylidenaminooxy, für jeweils gegebenenfalls substituiertes Cycloalkenyloxy oder Heterocycloxy, oder für eine der nachstehenden über Stickstoff oder Sauerstoff gebundenen Gruppierungen steht

—NR⁶R⁷, —N=CR⁸R⁹, —O—CO—R¹⁰, —O—CHR¹¹—P(O)(OR¹²)₂, wobei

R⁶ für Wasserstoff, für jeweils gegebenenfalls durch Halogen substituiertes Alkyl, Alkenyl oder Alkynyl, oder für die Gruppierung —CO—R¹³ steht, worin

R¹³ für Wasserstoff, für jeweils gegebenenfalls durch Halogen oder Alkoxy substituiertes Alkyl oder Alkoxy, für Amino, Alkylamino oder Dialkylamino, oder für jeweils gegebenenfalls substituiertes Cycloalkyl, Cycloalkylalkyl, Aryl, Arylalkyl oder Heterocyclalkyl steht,

R⁷ für die Gruppierung —(CO)_n—R¹³ steht, worin

R¹³ die oben angegebene Bedeutung hat und

n für die Zahlen 1 oder 2 steht,

R⁸ für Wasserstoff, Alkyl oder Alkoxy steht,

R⁹ für Alkoxy, Alkylamino oder Dialkylamino steht,

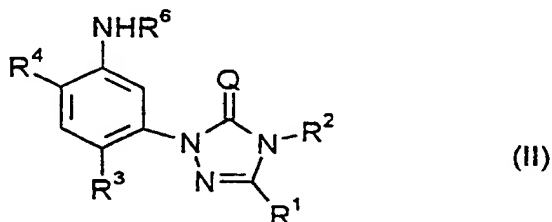
R¹⁰ für gegebenenfalls durch Halogen substituiertes Alkyl, für Alkoxy, für Alkylamino oder für gegebenenfalls substituiertes Aryl steht,

R¹¹ für jeweils gegebenenfalls durch Halogen substituiertes Alkyl oder Cycloalkyl oder für jeweils gegebenenfalls substituiertes Aryl oder Heterocycl steht, und

R¹² für Alkyl steht.

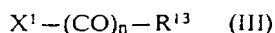
Weiterhin wurde gefunden, daß man die neuen substituierten Triazolinone der allgemeinen Formel (I) erhält, wenn man

(a) Aminoaryltriazolinone der allgemeinen Formel (II)

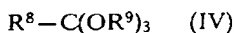


in welcher

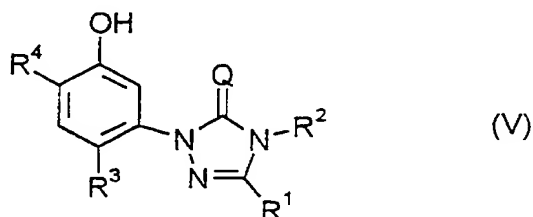
Q, R¹, R², R³, R⁴ und R⁶ die oben angegebenen Bedeutungen haben, mit Säurehalogeniden der allgemeinen Formel (III)



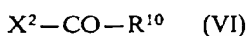
in welcher
n und R^{13} die oben angegebene Bedeutung haben und
 X^1 für Halogen steht, oder mit Orthoestern der allgemeinen Formel (IV)



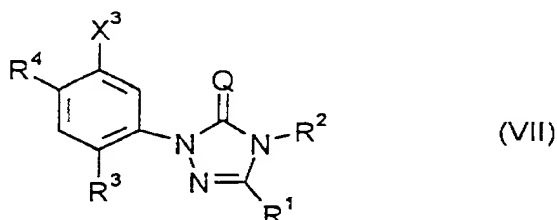
in welcher
 R^8 und R^9 die oben angegebenen Bedeutungen haben,
gegebenenfalls in Gegenwart eines Reaktionshilfsmittels und gegebenenfalls in Gegenwart eines Verdünnungsmittels umgesetzt,
oder wenn man
(b) Hydroxyaryltriaolinone der allgemeinen Formel (V)



in welcher
Q, R^1 , R^2 , R^3 und R^4 die oben angegebenen Bedeutungen haben, mit Säurehalogeniden der allgemeinen Formel (VI)



in welcher
 R^{10} die oben angegebene Bedeutung hat und
 X^2 für Halogen steht,
gegebenenfalls in Gegenwart eines Säureakzeptors und gegebenenfalls in Gegenwart eines Verdünnungsmittels umgesetzt,
oder wenn man
(c) Halogenaryltriaolinone der allgemeinen Formel (VII)



in welcher
Q, R^1 , R^2 , R^3 und R^4 die oben angegebenen Bedeutungen haben und

X^3 für Halogen steht,
mit Hydroxyalkylphosphonsäureestern der allgemeinen Formel (VIII)



in welcher
 R^{11} und R^{12} die oben angegebenen Bedeutungen haben, gegebenenfalls in Gegenwart eines Säureakzeptors und gegebenenfalls in Gegenwart eines Verdünnungsmittels umgesetzt.

Schließlich wurde gefunden, daß die neuen substituierten Triazolinone der allgemeinen Formel (I) interessante herbizide Eigenschaften besitzen.

Überraschenderweise zeigen die erfindungsgemäßen substituierten Triazolinone der allgemeinen Formel (I) eine erheblich bessere herbizide Wirksamkeit gegenüber Problemunkräutern im Vergleich mit den aus dem Stand der Technik bekannten substituierten Triazolinonen, wie beispielsweise die Verbindung 2-(4-Cyano-2,5-difluor-phenyl)-5-methyl-4-propargyl-2,4-dihydro-3H-1,2,4-triazol-3-on.

Gegenstand der Erfindung sind vorzugsweise Verbindungen der Formel (I), in welcher Q für Sauerstoff oder Schwefel steht,

R¹ für geradkettiges oder verzweigtes Halogenalkyl mit 1 bis 6 Kohlenstoffatomen und 1 bis 13 gleichen oder verschiedenen Halogenatomen — insbesondere Fluor, Chlor, Brom oder Iod — steht,

5 R² für Wasserstoff, Amino, Cyano, für geradkettiges oder verzweigtes Alkyl mit 1 bis 8 Kohlenstoffatomen, für jeweils geradkettiges oder verzweigtes Alkenyl oder Alkynyl mit jeweils 2 bis 6 Kohlenstoffatomen, für geradkettiges oder verzweigtes Halogenalkyl mit 1 bis 6 Kohlenstoffatomen und 1 bis 13 gleichen oder verschiedenen Halogenatomen — insbesondere Fluor, Chlor, Brom oder Iod —, für jeweils geradkettiges oder verzweigtes Halogenalkenyl oder Halogenalkynyl mit jeweils 2 bis 6 Kohlenstoffatomen und 1 bis 11 gleichen oder verschiedenen Halogenatomen — insbesondere Fluor, Chlor, Brom oder Iod —, für geradkettiges oder verzweigtes Alkoxyalkyl mit jeweils 1 bis 4 Kohlenstoffatomen in den einzelnen Alkylteilen, für geradkettiges oder verzweigtes Alkylidenimino mit 1 bis 8 Kohlenstoffatomen oder für jeweils gegebenenfalls im Cycloalkylteil einfach oder mehrfach, gleich oder verschieden durch Halogen — insbesondere Fluor, Chlor, Brom und/oder Iod — substituier-
10 tes Cycloalkyl oder Cycloalkylalkyl mit jeweils 3 bis 8 Kohlenstoffatomen im Cycloalkylteil und gegebenenfalls 1 bis 4 Kohlenstoffatomen im geradkettigen oder verzweigten Alkylteil steht,

R³ für Wasserstoff, Fluor, Chlor, Brom oder Iod steht,

R⁴ für Cyano oder Nitro steht, und

R⁵ für Isocyano, Thiocyanato, Sulfo, Halogensulfonyl, C₁—C₆-Alkylaminooxy, Di(C₁—C₄-alkyl)-aminooxy, C₁—C₆-Alkylidenaminooxy oder C₅—C₆-Cycloalkylidenaminooxy, für jeweils gegebenenfalls durch Halogen, C₁—C₄-Alkyl oder C₁—C₄-Alkoxy substituiertes C₅—C₆-Cycloalkenyloxy, Perhydrofuranyloxy oder Perhydro-
20 pyraniloxy, oder für eine der nachstehenden über Stickstoff oder Sauerstoff gebundenen Gruppierungen steht —NR⁶R⁷, —N=CR⁸R⁹, —O—CO—R¹⁰, —O—CHR¹¹—P(O)(OR¹²)₂, wobei

R⁶ für Wasserstoff, für jeweils gegebenenfalls durch Fluor und/oder Chlor substituiertes Alkyl, Alkenyl oder Alkynyl mit jeweils bis zu 6 Kohlenstoffatomen oder für die Gruppierung —CO—R¹³ steht, worin

25 R¹³ für Wasserstoff, für jeweils gegebenenfalls durch Fluor, Chlor oder C₁—C₄-Alkoxy substituiertes Alkyl oder Alkoxy mit jeweils 1 bis 6 Kohlenstoffatomen, für Amino, für Alkylamino oder Dialkylamino mit jeweils 1 bis 6 Kohlenstoffatomen in den Alkylteilen, oder für jeweils gegebenenfalls substituiertes C₃—C₆-Cycloalkyl, C₃—C₆-Cycloalkyl-C₁—C₄-alkyl, Phenyl, Naphthyl, Phenyl-C₁—C₄-alkyl, Furyl, Thienyl oder Pyridyl steht, wobei jeweils als Substituenten in Frage kommen:

30 Halogen, Cyano, Nitro, jeweils geradkettiges oder verzweigtes Alkyl, Alkoxy, Alkylthio, Alkylsulfinyl oder Alkylsulfonyl mit jeweils 1 bis 4 Kohlenstoffatomen, jeweils geradkettiges oder verzweigtes Halogenalkyl, Halogenalkoxy, Halogenalkylthio, Halogenalkylsulfinyl oder Halogenalkylsulfonyl mit jeweils 1 bis 4 Kohlenstoffatomen und 1 bis 9 gleichen oder verschiedenen Halogenatomen, jeweils geradkettiges oder verzweigtes Alkoxy-carbonyl oder Alkoxyiminoalkyl mit jeweils 1 bis 4 Kohlenstoffatomen in den einzelnen Alkylteilen sowie
35 gegebenenfalls einfach oder mehrfach, gleich oder verschieden durch Halogen und/oder geradkettiges oder verzweigtes Alkyl oder Alkoxy mit jeweils 1 bis 4 Kohlenstoffatomen und/oder geradkettiges oder verzweigtes Halogenalkyl oder Halogenalkoxy mit jeweils 1 bis 4 Kohlenstoffatomen und 1 bis 9 gleichen oder verschiedenen Halogenatomen substituiertes Phenyl;

R⁷ für die Gruppierung (CO)_n—R¹³ steht, worin

40 R¹³ die oben als bevorzugt angegebene Bedeutung hat und n für die Zahlen 1 oder 2 steht,

R⁸ für Wasserstoff oder für Alkyl oder Alkoxy mit jeweils 1 bis 6 Kohlenstoffatomen steht,

R⁹ für Alkoxy, Alkylamino oder Dialkylamino, jeweils mit 1 bis 6 Kohlenstoffatomen in den Alkylgruppen steht,

45 R¹⁰ für gegebenenfalls durch Fluor und/oder Chlor substituiertes Alkyl mit 1 bis 6 Kohlenstoffatomen, für Alkoxy oder Alkylamino mit jeweils 1 bis 6 Kohlenstoffatomen oder für gegebenenfalls substituiertes Phenyl steht, wobei die oben unter R⁶ als bevorzugt angegebenen Phenylsubstituenten auch hier vorzugsweise in Frage kommen,

R¹¹ für jeweils gegebenenfalls durch Fluor und/oder Chlor substituiertes Alkyl mit 1 bis 6 Kohlenstoffatomen oder Cycloalkyl mit 3 bis 6 Kohlenstoffatomen oder für jeweils gegebenenfalls substituiertes Phenyl, Naphthyl, Furyl, Thienyl oder Pyridyl steht, wobei auch hier die oben unter R⁶ als bevorzugt angegebenen Phenylsubstitu-
50 enten vorzugsweise in Frage kommen und

R¹² für Alkyl mit 1 bis 6 Kohlenstoffatomen steht.

Die Erfindung betrifft insbesondere Verbindungen der Formel (I), in welcher

Q für Sauerstoff oder Schwefel steht,

55 R¹ für geradkettiges oder verzweigtes Halogenalkyl mit 1 bis 4 Kohlenstoffatomen und 1 bis 9 gleichen oder verschiedenen Halogenatomen — insbesondere Fluor, Chlor, Brom oder Iod — steht,

R² für Wasserstoff, Amino, Cyano, für geradkettiges oder verzweigtes Alkyl mit 1 bis 4 Kohlenstoffatomen, für jeweils geradkettiges oder verzweigtes Alkenyl oder Alkynyl mit jeweils 3 bis 4 Kohlenstoffatomen, für geradkettiges oder verzweigtes Halogenalkyl mit 1 bis 4 Kohlenstoffatomen und 1 bis 9 gleichen oder verschiedenen

60 Halogenatomen — insbesondere Fluor oder Chlor —, für jeweils geradkettiges oder verzweigtes Halogenalkenyl oder Halogenalkynyl mit jeweils 3 bis 4 Kohlenstoffatomen und 1 bis 5 gleichen oder verschiedenen Halogenatomen — insbesondere Fluor oder Chlor —, für geradkettiges oder verzweigtes Alkoxyalkyl mit jeweils 1 bis 3 Kohlenstoffatomen in den einzelnen Alkylteilen, für geradkettiges oder verzweigtes Alkylidenimino mit 1 bis 4 Kohlenstoffatomen oder für jeweils gegebenenfalls im Cycloalkylteil einfach oder mehrfach, gleich oder verschieden durch Halogen — insbesondere Fluor oder Chlor — substituiertes Cycloalkyl oder Cycloalkylalkyl mit jeweils 3 bis 6 Kohlenstoffatomen im Cycloalkylteil und gegebenenfalls 1 bis 3 Kohlenstoffatomen im geradkettigen oder verzweigten Alkylteil steht,

R³ für Wasserstoff, Fluor oder Chlor steht,

R⁴ für Cyano oder Nitro steht, und
 R⁵ für Isocyano, Thiocyanato, Seleno, Chlorsulfonyl, C₁–C₄-Alkyl-aminoxy, (C₁–C₃-alkyl)-aminoxy, C₁–C₄-Alkyliden-aminoxy, C₅–C₆-Cycloalkylidenaminoxy, C₅–C₆-Cycloalkenyloxy, Tetrahydrofuranyloxy, Perhydropyranlyoxy, oder für eine der nachstehenden über Stickstoff oder Sauerstoff gebundenen Gruppierungen steht

–NR⁶R⁷, –N=CR⁸R⁹, –O–CO–R¹⁰, –O–CHR¹¹–P(O)(OR¹²)₂, wobei

R⁶ für Wasserstoff, für gegebenenfalls durch Fluor substituiertes Alkyl mit 1 bis 4 Kohlenstoffatomen oder die Gruppierung –CO–R¹³ steht, worin

R¹³ für Wasserstoff, für jeweils gegebenenfalls durch Fluor, Chlor, Methoxy oder Ethoxy substituiertes Alkyl oder Alkoxy mit jeweils 1 bis 4 Kohlenstoffatomen, für Amino, für Alkylamino oder Dialkylamino mit jeweils 1 bis 4 Kohlenstoffatomen in den Alkylteilen, oder für jeweils gegebenenfalls substituiertes Cyclopropyl, Cyclopentyl, Cyclohexyl, Cyclopropylmethyl, Cyclopentylmethyl, Cyclohexylmethyl, Phenyl, Benzyl, Phenylethyl, Furyl, Thienyl oder Pyridyl steht, wobei jeweils als Substituenten in Frage kommen:

Fluor, Chlor, Brom, Cyano, Nitro, jeweils geradkettiges oder verzweigtes Alkyl, Alkoxy, Alkylthio, Alkylsulfinyl oder Alkylsulfonyl mit jeweils 1 bis 4 Kohlenstoffatomen, jeweils geradkettiges oder verzweigtes Halogenalkyl, Halogenalkoxy, Halogenalkylthio, Halogenalkylsulfinyl oder Halogenalkylsulfonyl mit jeweils 1 bis 4 Kohlenstoffatomen und 1 bis 9 gleichen oder verschiedenen Halogenatomen – insbesondere Fluor- und/oder Chloratomen, jeweils geradkettiges oder verzweigtes Alkoxycarbonyl oder Alkoximinoalkyl mit jeweils 1 bis 4 Kohlenstoffatomen in den einzelnen Alkylteilen sowie gegebenenfalls einfach oder mehrfach, gleich oder verschieden durch Fluor, Chlor, Brom und/oder geradkettiges oder verzweigtes Alkyl oder Alkoxy mit jeweils 1 bis 4 Kohlenstoffatomen und/oder geradkettiges oder verzweigtes Halogenalkyl oder Halogenalkoxy mit jeweils 1 bis 4 Kohlenstoffatomen und 1 bis 9 gleichen oder verschiedenen Halogenatomen – insbesondere Fluor- und/oder Chloratomen substituiertes Phenyl;

R⁷ für die Gruppierung –(CO)_n–R¹³ steht, worin

R¹³ die oben als insbesondere bevorzugt angegebene Bedeutung hat und

n für die Zahlen 1 oder 2 steht,

R⁸ für Wasserstoff oder für Alkyl oder Alkoxy mit jeweils 1 bis 4 Kohlenstoffatomen steht,

R⁹ für Alkoxy, Alkylamino oder Dialkylamino mit jeweils 1 bis 4 Kohlenstoffatomen in den Alkylgruppen steht,

R¹⁰ für gegebenenfalls durch Fluor und/oder Chlor substituiertes Alkyl mit 1 bis 4 Kohlenstoffatomen, für Alkoxy oder Alkylamino mit jeweils 1 bis 4 Kohlenstoffatomen oder für gegebenenfalls substituiertes Phenyl steht, wobei die oben unter R⁶ als insbesondere bevorzugt angegebenen Phenylsubstituenten auch hier vorzugsweise in Frage kommen,

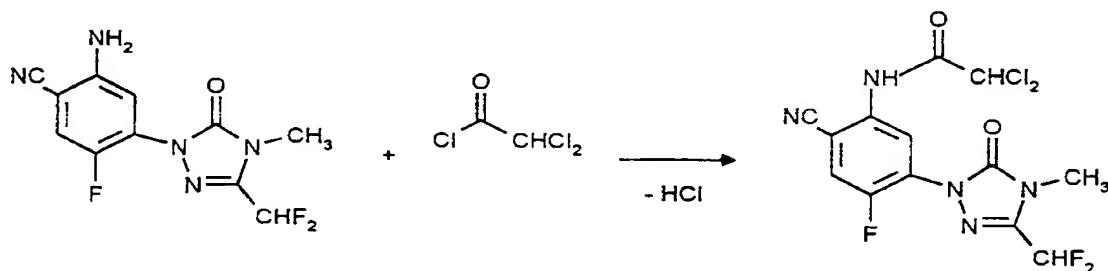
R¹¹ für jeweils gegebenenfalls durch Fluor und/oder Chlor substituiertes Alkyl mit 1 bis 4 Kohlenstoffatomen oder Cycloalkyl mit 3 bis 6 Kohlenstoffatomen oder für jeweils gegebenenfalls substituiertes Phenyl, Naphthyl, Furyl, Thienyl oder Pyridyl steht, wobei auch hier die oben unter R⁶ als besonders bevorzugt angegebenen Phenylsubstituenten vorzugsweise in Frage kommen und

R¹² für Alkyl mit 1 bis 4 Kohlenstoffatomen steht.

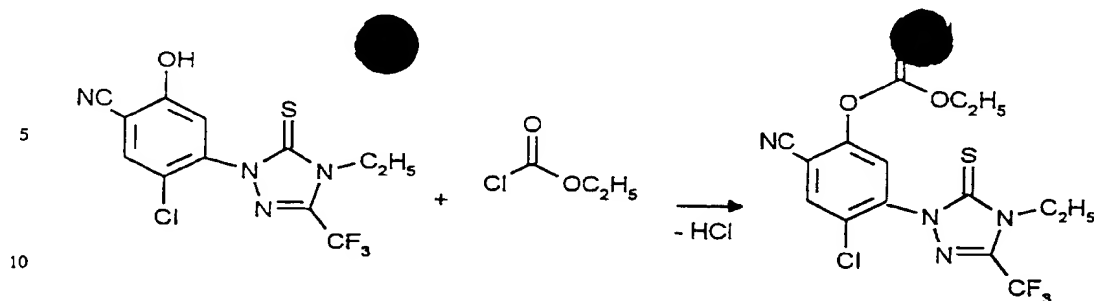
Die oben aufgeführten allgemeinen oder in Vorzugsbereichen angegebenen Restdefinitionen gelten sowohl für die Endprodukte der Formel (I) als auch entsprechend für die jeweils zu Herstellung benötigten Ausgangsstoffe bzw. Zwischenprodukte.

Diese Restdefinitionen können untereinander, also auch zwischen den angegebenen Bereichen bevorzugter Verbindungen, beliebig kombiniert werden.

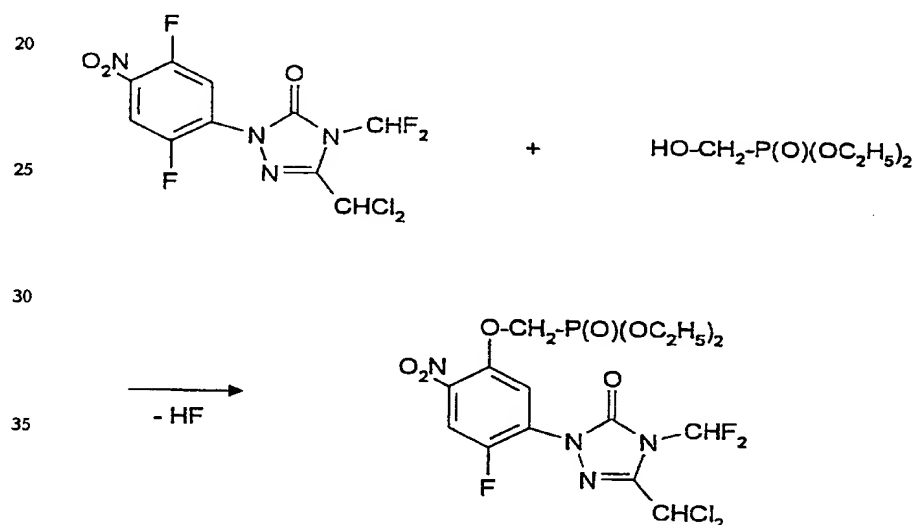
Verwendet man für die Durchführung des erfindungsgemäßen Verfahrens (a) beispielsweise 2-(5-Amino-4-cyano-2-fluor-phenyl)-5-difluormethyl-4-methyl-2,4-dihydro-3H-1,2,4-triazol-3-on und Dichloracetylchlorid als Ausgangsstoffe, so kann der Reaktionsablauf durch das folgende Formelschema skizziert werden:



Verwendet man für die Durchführung des erfindungsgemäßen Verfahrens (b) beispielsweise 2-(2-Chlor-4-cyano-5-hydroxy-phenyl)-4-ethyl-5-trifluormethyl-2,4-dihydro-3H-1,2,4-triazol-3-thion und Chlorameisensäure-ethyl-ester als Ausgangsstoffe, so kann der Reaktionsablauf durch das folgende Formelschema skizziert werden:



15 Verwendet man zur Durchführung des erfindungsgemäßen Verfahrens (c) beispielsweise 2-(2,5-Difluor-4-nitro-phenyl)-5-dichlormethyl-4-difluormethyl-2,4-dihydro-3H-1,2,4-triazol-3-on und Hydroxymethan-phosphonsäure-diethylester als Ausgangsstoffe, so kann der Reaktionsablauf durch das folgende Formelschema skizziert werden:



Die beim erfindungsgemäßen Verfahren (a) zur Herstellung der Verbindungen der allgemeinen Formel (I) als Ausgangsstoffe zu verwendenden Aminoaryltriazolinone sind durch die Formel (II) allgemein definiert. In der Formel (II) haben Q, R¹, R², R³, R⁴ und R⁶ vorzugsweise bzw. insbesondere diejenigen Bedeutungen, die bereits oben im Zusammenhang mit der Beschreibung der Verbindungen der Formel (I) als bevorzugt bzw. als insbesondere bevorzugt für Q, R¹, R², R³, R⁴ und R⁶ angegeben wurden.

Die Ausgangsstoffe der Formel (II) sind noch nicht aus der Literatur bekannt; sie sind jedoch Gegenstand älterer, noch nicht veröffentlichter Patentanmeldungen.

Man erhält die Aminoaryltriazolinone der allgemeinen Formel (II), wenn man Halogenaryltriazolinone der allgemeinen Formel (VIII) — oben — mit Ammoniak gegebenenfalls in Gegenwart eines Verdünnungsmittels, wie z. B. Dimethylsulfoxid, bei Temperaturen zwischen 0°C und 150°C umsetzt (vgl. die Herstellungsbeispiele).

Die beim erfindungsgemäßen Verfahren (a) weiter gegebenenfalls als Ausgangsstoffe zu verwendenden Säurehalogenide sind durch die Formel (III) allgemein definiert. In der Formel (II) haben n und R¹³ vorzugsweise bzw. insbesondere diejenigen Bedeutungen, die bereits oben im Zusammenhang mit der Beschreibung der Verbindungen der Formel (I) als bevorzugt bzw. als insbesondere bevorzugt für n und R¹³ angegeben wurden; X¹ steht vorzugsweise für Fluor, Chlor oder Brom, insbesondere für Chlor.

Die Ausgangsstoffe der Formel (III) sind bekannte organische Syntheschemikalien.

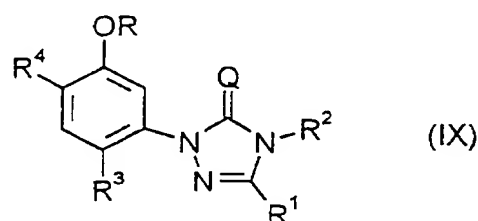
Die beim erfindungsgemäßen Verfahren (a) gegebenenfalls weiter als Ausgangsstoffe zu verwendenden Orthoester sind durch die Formel (IV) allgemein definiert. In der Formel (IV) haben R⁸ und R⁹ vorzugsweise bzw. insbesondere diejenigen Bedeutungen, die bereits oben im Zusammenhang mit der Beschreibung der Verbindungen der Formel (I) als bevorzugt bzw. als insbesondere bevorzugt für R⁵ und R⁹ angegeben wurden.

Die Ausgangsstoffe der Formel (IV) sind bekannte organische Syntheschemikalien.

Die beim erfindungsgemäßen Verfahren (b) zur Herstellung der Verbindungen der allgemeinen Formel (I) als Ausgangsstoffe zu verwendenden Hydroxyaryltriazolinone sind durch die Formel (V) allgemein definiert. In der Formel (V) haben Q, R¹, R², R³ und R⁴ vorzugsweise bzw. insbesondere diejenigen Bedeutungen, die bereits oben im Zusammenhang mit der Beschreibung der Verbindungen der Formel (I) als bevorzugt bzw. als insbesondere bevorzugt für Q, R¹, R², R³ und R⁴ angegeben wurden.

Die Ausgangsstoffe der Formel (V) sind noch nicht aus der Literatur bekannt; sie sind jedoch Gegenstand einer älteren, nicht veröffentlichten Patentanmeldung (vgl. DE-P 42 38 125/LeA 29445 vom 12.11.1992).

Man erhält die Hydroxyaryltrialzolinone der allgemeinen Formel (V), wenn man Hydroxyaryltrialzolinone der allgemeinen Formel (IX)



in welcher

Q, R¹, R², R³ und R⁴ die oben angegebenen Bedeutungen haben und R für Alkyl (vorzugsweise für Methyl oder Ethyl) steht,

mit einem Entalkylierungsmittel, wie z. B. Bor(III)-bromid, in Gegenwart eines Verdünnungsmittels, wie z. B. Methylenchlorid, bei Temperaturen zwischen 0°C und 50°C umgesetzt und auf übliche Weise aufarbeitet (vgl. die Herstellungsbeispiele).

Die beim erfindungsgemäßen Verfahren (b) weiter als Ausgangsstoffe zu verwendenden Säurehalogenide sind durch die Formel (VI) allgemein definiert. In der Formel (VI) hat R¹⁰ vorzugsweise bzw. insbesondere diejenige Bedeutung, die bereits oben im Zusammenhang mit der Beschreibung der Verbindungen der Formel (I) als bevorzugt bzw. als insbesondere bevorzugt für R¹⁰ angegeben wurde;

X² steht vorzugsweise für Fluor, Chlor oder Brom, insbesondere für Chlor.

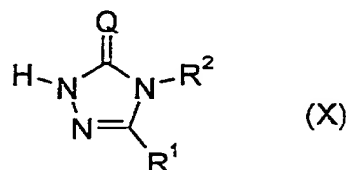
Die Ausgangsstoffe der Formel (VI) sind bekannte organische Syntheschemikalien.

Die beim erfindungsgemäßen Verfahren (c) zur Herstellung der Verbindungen der allgemeinen Formel (I) als Ausgangsstoffe zu verwendenden Halogenaryltrialzolinone sind durch die Formel (VII) allgemein definiert. In der Formel (VII) haben Q, R¹, R², R³ und R⁴ vorzugsweise bzw. insbesondere diejenigen Bedeutungen, die bereits oben im Zusammenhang mit der Beschreibung der Verbindungen der Formel (I) als bevorzugt bzw. als insbesondere bevorzugt für Q, R¹, R², R³ und R⁴ angegeben wurden;

X³ steht vorzugsweise für Fluor oder Chlor, insbesondere für Fluor.

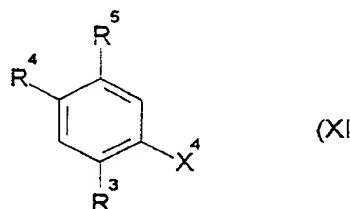
Die Ausgangsstoffe der Formel (VII) sind noch nicht aus der Literatur bekannt; sie sind jedoch Gegenstand einer älteren, nicht veröffentlichten Patentanmeldung.

Man erhält die Halogenaryltrialzolinone der allgemeinen Formel (VII), wenn man Triazolinone der allgemeinen Formel (X)



in welcher

Q, R¹ und R² die oben angegebenen Bedeutungen haben, mit Halogenarenen der allgemeinen Formel (XI)



in welcher

R³, R⁴ und R⁵ die oben angegebenen Bedeutungen haben und

X⁴ für Halogen, vorzugsweise für Fluor oder Chlor, insbesondere für Fluor steht,

in Gegenwart eines Verdünnungsmittels, wie z. B. Dimethylsulfoxid und in Gegenwart eines Säureakzeptors, wie z. B. Kaliumcarbonat, bei Temperaturen zwischen 0°C und 150°C umgesetzt und auf übliche Weise aufarbeitet (vgl. die Herstellungsbeispiele).

Die beim erfindungsgemäßen Verfahren (c) weiter als Ausgangsstoffe zu verwendenden Hydroxyalkylphosphonsäureester sind durch die Formel (VIII) allgemein definiert. In der Formel (VIII) haben R¹¹ und R¹² vorzugsweise bzw. insbesondere diejenigen Bedeutungen, die bereits oben im Zusammenhang mit der Beschrei-

bung der Verbindungen der Formel (I) als bevorzugt bzw. als insbesondere bevorzugt für R^1 und R^{12} angegeben wurden.

Die Ausgangsstoffe der Formel (VIII) sind bekannte organische Syntheschemikalien.

Als Verdünnungsmittel zur Durchführung der erfindungsgemäßen Verfahren (a), (b) und (c) kommen die üblichen organischen Lösungsmittel in Betracht. Hierzu gehören insbesondere aliphatische, alicyclische oder aromatische, gegebenenfalls halogenierte Kohlenwasserstoffe, wie beispielsweise Benzin, Benzol, Toluol, Xylol, Chlorbenzol, Dichlorbenzol, Petroether, Hexan, Cyclohexan, Dichlormethan, Chloroform, Tetrachlormethan; Ether, wie Diethylether, Diisopropylether, Dioxan, Tetrahydrofuran oder Ethylenglykoldimethyl- oder -diethylether; Ketone, wie Aceton, Butanon oder Methyl-isobutyl-keton; Nitrile, wie Acetonitril, Propionitril oder Benzonnitril; Amide, wie N,N-Dimethylformamid, N,N-Dimethylacetamid, N-Methylformanilid, N-Methyl-pyrrolidon oder Hexamethylphosphorsäuretriamid; Ester wie Essigsäuremethylester oder Essigsäureethylester, Sulf-oxide, wie Dimethylsulfoxid, Alkohole, wie Methanol, Ethanol, n- oder i-Propanol, Ethylenglykolmonomethylether, Ethylenglykolmonoethylether, Diethylenglykolmonomethylether, Diethylenglykolmonoethylether, deren Gemische mit Wasser oder reines Wasser.

Das erfindungsgemäße Verfahren (a) wird vorzugsweise in Gegenwart eines geeigneten Reaktionshilfsmittels durchgeführt. Als solche kommen für die Umsetzung mit den Säurehalogeniden der Formel (III) alle üblichen anorganischen oder organischen Basen in Frage. Hierzu gehören beispielsweise Erdalkali- oder Alkalimetallhydride, -hydroxide, -amide, -alkoholate, -acetate, -carbonate oder -hydrogencarbonate, wie beispielsweise Natriumhydrid, Natriumamid, Natriummethylat, Natriumethylat, Kalium-tert.-butylat, Natriumhydroxid, Kaliumhydroxid, Ammoniumhydroxid, Natriumacetat, Kaliumacetat, Calciumacetat, Ammoniumacetat, Natriumcarbonat, Kaliumcarbonat, Kaliumhydrogencarbonat, Natriumhydrogencarbonat oder Ammoniumcarbonat sowie basische organische Stickstoffverbindungen, wie Trimethylamin, Triethylamin, Tributylamin, N,N-Dimethylanilin, Pyridin, N-Methylpiperidin, N,N-Dimethylaminopyridin, Diazabicyclooctan (DABCO), Diazabicyclononen (DBN) oder Diazabicycloundecen (DBU).

Für die Umsetzung mit den Orthoestern der Formel (IV) werden als Reaktionshilfsmittel im allgemeinen saure Katalysatoren eingesetzt. Vorzugsweise kommen hierbei starke Protonensäuren, wie z. B. Salzsäure bzw. Hydrogenchlorid, Schwefelsäure, Methansulfonsäure, Benzolsulfonsäure und p-Toluolsulfonsäure in Betracht.

Die Reaktionstemperaturen können bei der Durchführung des erfindungsgemäßen Verfahrens (a) in einem größeren Bereich variiert werden. Im allgemeinen arbeitet man bei Temperaturen zwischen 0°C und 150°C , vorzugsweise bei Temperaturen zwischen 10°C und 100°C .

Das erfindungsgemäße Verfahren (a) wird im allgemeinen unter Normaldruck durchgeführt. Es ist jedoch auch möglich, unter erhöhtem oder vermindertem Druck — im allgemeinen zwischen 0,1 bar und 10 bar — zu arbeiten.

Zur Durchführung des erfindungsgemäßen Verfahrens (a) werden die jeweils benötigten Ausgangsstoffe im allgemeinen in angenähert äquimolaren Mengen eingesetzt. Es ist jedoch auch möglich, eine der beiden jeweils eingesetzten Komponenten in einem größeren Überschuß zu verwenden. Die Reaktionen werden im allgemeinen in einem geeigneten Verdünnungsmittel in Gegenwart eines Reaktionshilfsmittels durchgeführt, und das Reaktionsgemisch wird mehrere Stunden bei der jeweils erforderlichen Temperatur gerührt. Die Aufarbeitung erfolgt bei dem erfindungsgemäßen Verfahren jeweils nach üblichen Methoden (vgl. die Herstellungsbeispiele).

Die erfindungsgemäßen Verfahren (b) und (c) werden vorzugsweise in Gegenwart eines geeigneten Säureakzeptors durchgeführt. Als solche kommen alle üblichen anorganischen oder organischen Basen in Frage. Hierzu gehören beispielsweise Erdalkali- oder Alkalimetallhydride, -hydroxide, -amide, -alkoholate, -acetate, -carbonate oder -hydrogencarbonate, wie beispielsweise Natriumhydrid, Natriumamid, Natriummethylat, Natriumethylat, Kalium-tert.-butylat, Natriumhydroxid, Kaliumhydroxid, Ammoniumhydroxid, Natriumacetat, Kaliumacetat, Calciumacetat, Ammoniumacetat, Natriumcarbonat, Kaliumcarbonat, Kaliumhydrogencarbonat, Natriumhydrogencarbonat oder Ammoniumcarbonat sowie basische organische Stickstoffverbindungen, wie Trimethylamin, Triethylamin, Tributylamin, N,N-Dimethylanilin, Pyridin, N-Methylpiperidin, N,N-Dimethylaminopyridin, Diazabicyclooctan (DABCO), Diazabicyclononen (DBN) oder Diazabicycloundecen (DBU).

Die Reaktionstemperaturen können bei der Durchführung der erfindungsgemäßen Verfahren (b) und (c) in einem größeren Bereich variiert werden. Im allgemeinen arbeitet man bei Temperaturen zwischen 0°C und 100°C , vorzugsweise bei Temperaturen zwischen 10°C und 80°C .

Die erfindungsgemäßen Verfahren (b) und (c) werden im allgemeinen unter Normaldruck durchgeführt. Es ist jedoch auch möglich, unter erhöhtem oder vermindertem Druck — im allgemeinen zwischen 0,1 bar und 10 bar — zu arbeiten.

Zur Durchführung der erfindungsgemäßen Verfahren (b) und (c) werden die jeweils benötigten Ausgangsstoffe im allgemeinen in angenähert äquimolaren Mengen eingesetzt. Es ist jedoch auch möglich, eine der beiden jeweils eingesetzten Komponenten in einem größeren Überschuß zu verwenden. Die Reaktionen werden im allgemeinen in einem geeigneten Verdünnungsmittel in Gegenwart eines Säureakzeptors durchgeführt, und das Reaktionsgemisch wird mehrere Stunden bei der jeweils erforderlichen Temperatur gerührt. Die Aufarbeitung erfolgt bei dem erfindungsgemäßen Verfahren jeweils nach üblichen Methoden (vgl. die Herstellungsbeispiele).

Die erfindungsgemäßen Wirkstoffe können als Defolianten, Desiccants, Krautabtötungsmittel und insbesondere als Unkrautvernichtungsmittel verwendet werden. Unter Unkraut im weitesten Sinne sind alle Pflanzen zu verstehen, die an Orten aufwachsen, wo sie unerwünscht sind. Ob die erfindungsgemäßen Stoffe als totale oder selektive Herbizide wirken, hängt im wesentlichen von der angewandten Menge ab.

Die erfindungsgemäßen Wirkstoffe können z. B. bei den folgenden Pflanzen verwendet werden: Dikotyle Unkräuter der Gattungen: Sinapis, Lepidium, Galium, Stellaria, Matricaria, Anthemis, Galinsoga, Chenopodium, Urtica, Senecio, Amaranthus, Portulaca, Xanthium, Convolvulus, Ipomoea, Polygonum, Sesbania, Ambrosia, Cirsium, Carduus, Sonchus, Solanum, Rorippa, Rotala, Lindernia, Lamium, Veronica, Abutilon, Emex,

Datura, Viola, Galeopsis, Papaver, Urtica, Trifolium, Ranunculus, Taraxacum.

Dikotyle Kulturen der Gattungen: Gossypium, Glycine, Beta, Daucus, Phaseolus, Pisum, Solanum, Linum, Ipomoea, Vicia, Nicotiana, Lycopersicon, Arachis, Brassica, Lactuca, Cucumis, Cucurbita.

Monokotyle Unkräuter der Gattungen: Echinochloa, Setaria, Panicum, Digitaria Phleum, Poa, Festuca, Eleusine, Brachiaria, Lolium, Bromus, Avena, Cyperus, Sorghum, Agropyron, Cynodon, Monochoria, Fimbristylis, Sagittaria, Eleocharis, Scirpus, Paspalum, Ischaemum, Sphenoclea, Dactyloctenium, Agrostis, Alopecurus, Apera.

Monokotyle Kulturen der Gattungen: Oryza, Zea, Triticum, Hordeum, Avena, Secale, Sorghum, Panicum, Saccharum, Ananas, Asparagus, Allium.

Die Verwendung der erfindungsgemäßen Wirkstoffe ist jedoch keineswegs auf diese Gattungen beschränkt, sondern erstreckt sich in gleicher Weise auch auf andere Pflanzen.

Die Verbindungen eignen sich in Abhängigkeit von der Konzentration zur Totalunkrautbekämpfung z. B. auf Industrie- und Gleisanlagen und auf Wegen und Plätzen mit und ohne Baumbewuchs. Ebenso können die Verbindungen zur Unkrautbekämpfung in Dauerkulturen, z. B. Forst, Ziergehölz-, Obst-, Wein-, Citrus-, Nuß-, Bananen-, Kaffee-, Tee-, Gummi-, Ölpalm-, Kakao-, Beerenfrucht- und Hopfenanlagen, auf Zier- und Sportrasen und Weideflächen und zur selektiven Unkrautbekämpfung in einjährigen Kulturen eingesetzt werden.

Die erfindungsgemäßen Verbindungen der Formel (I) eignen sich insbesondere zur selektiven Bekämpfung von monokotylen und dikotylen Unkräutern in monokotylen und dikotylen Kulturen, wie z. Bsp. in Weizen und Gerste sowohl im Vorauf- als auch im Nachauf-Verfahren.

In gewissem Umfang zeigen die Verbindungen der Formel (I) auch fungizide Wirksamkeit, beispielsweise gegen *pyricularia oryzae*, *phytophthora infestans* und *venturia inaequalis*.

Die Wirkstoffe können in die üblichen Formulierungen übergeführt werden, wie Lösungen, Emulsionen, Spritzpulver, Suspensionen, Pulver, Stäubemittel, Pasten, lösliche Pulver, Granulate, Suspensions-Emulsions-Konzentrate, Wirkstoff-imprägnierte Natur- und synthetische Stoffe sowie Feinstverkapselungen in polymeren Stoffen.

Diese Formulierungen werden in bekannter Weise hergestellt, z. B. durch Vermischen der Wirkstoffe mit Streckmitteln, also flüssigen Lösungsmitteln und/oder festen Trägerstoffen, gegebenenfalls unter Verwendung von oberflächenaktiven Mitteln, also Emulgiermitteln und/oder Dispergiermitteln und/oder schaumzeugenden Mitteln.

Im Falle der Benutzung von Wasser als Streckmittel können z. B. auch organische Lösungsmittel als Hilfslösungsmittel verwendet werden. Als flüssige Lösungsmittel kommen im wesentlichen in Frage: Aromaten, wie Xylol, Toluol, oder Alkyl-naphthaline, chlorierte Aromaten und chlorierte aliphatische Kohlenwasserstoffe, wie Chlorbenzole, Chlorethylene oder Methylenchlorid, aliphatische Kohlenwasserstoffe, wie Cyclohexan oder Paraffine, z. B. Erdölfraktionen, mineralische und pflanzliche Öle, Alkohole, wie Butanol oder Glykol sowie deren Ether und Ester, Ketone wie Aceton, Methyl-ethylketon, Methylisobutylketon oder Cyclohexanon, stark polare Lösungsmittel, wie Dimethylformamid und Dimethylsulfoxid, sowie Wasser.

Als feste Trägerstoffe kommen in Frage:

z. B. Ammoniumsalze und natürliche Gesteinsmehle, wie Kaoline, Tonerden, Talkum, Kreide, Quarz, Attapulgit, Montmorillonit oder Diatomeenerde und synthetische Gesteinsmehle, wie hochdisperse Kieselsäure, Aluminiumoxid und Silikate, als feste Trägerstoffe für Granulate kommen in Frage: z. B. gebrochene und fraktionierte natürliche Gesteine wie Calcit, Marmor, Bims, Sepiolith, Dolomit sowie synthetische Granulate aus anorganischen und organischen Mehlen sowie Granulate aus organischem Material wie Sägemehl, Kokosnußschalen, Maiskolben und Tabakstengeln; als Emulgier- und/oder schaumzeugende Mittel kommen in Frage: z. B. nichtionogene und anionische Emulgatoren, wie Polyoxyethylen-Fettsäure-Ester, Polyoxyethylen-Fettalkohol-Ether, z. B. Alkylarylpolyglykolether, Alkylsulfonate, Alkylsulfate, Arylsulfonate sowie Eiweißhydrolysate; als Dispergiermittel kommen in Frage: z. B. Lignin-Sulfitablaugen und Methylcellulose.

Es können in den Formulierungen Haftmittel wie Carboxymethylcellulose, natürliche und synthetische pulvrige, körnige oder latexförmige Polymere verwendet werden, wie Gummiarabicum, Polyvinylalkohol, Polyvinylacetat, sowie natürliche Phospholipide, wie Kephaleine und Lecithine und synthetische Phospholipide. Weitere Additive können mineralische und vegetabile Öle sein.

Es können Farbstoffe wie anorganische Pigmente, z. B. Eisenoxid, Titanoxid, Ferrocyanblau und organische Farbstoffe, wie Alizarin-, Azo- und Metallphthalocyaninfarbstoffe und Spurennährstoffe wie Salze von Eisen, Mangan, Bor, Kupfer, Kobalt, Molybdän und Zink verwendet werden.

Die Formulierungen enthalten im allgemeinen zwischen 0,1 und 95 Gewichtsprozent Wirkstoff, vorzugsweise zwischen 0,5 und 90%.

Die erfindungsgemäßen Wirkstoffe können als solche oder in ihren Formulierungen auch in Mischung mit bekannten Herbiziden zur Unkrautbekämpfung Verwendung finden, wobei Fertigformulierungen oder Tankmischungen möglich sind.

Für die Mischungen kommen bekannte Herbizide in Frage, beispielsweise Anilide, wie z. B. Diflufenican und Propanil; Arylcarbonsäuren, wie z. B. Dichlorpicolinsäure, Dicamba und Picloram; Aryloxyalkansäuren, wie z. B. 2,4 D, 2,4 DB, 2,4 DP, Fluroxypyr, MCPA, MCPP und Triclopyr; Aryloxy-phenoxy-alkansäureester, wie z. B. Diclofop-methyl, Fenoxaprop-ethyl, Fluazifop-butyl, Haloxypop-methyl und Quizalofop-ethyl; Azinone, wie z. B. Chloridazon und Nofflurazon; Carbamate, wie z. B. Chlorpropham, Desmedipham, Phenmedipham und Protham; Chloracetanilide, wie z. B. Alachlor, Acetochlor, Butachlor, Metazachlor, Metolachlor, Pretilachlor und Propachlor; Dinitroaniline, wie z. B. Oryzalin, Pendimethalin und Trifluralin; Diphenylether, wie z. B. Acifluorfen, Bifenox, Fluoroglycofen, Fomesafen, Halosafen, Lactofen und Oxyfluorfen; Harnstoffe, wie z. B. Chlortoluron, Diuron, Fluometuron, Isoproturon, Linuron und Methabenzthiazuron; Hydroxylamine, wie z. B. Alloxymid, Clethodim, Cycloxydim, Sethoxydim und Tralkoxydim; Imidazolinone, wie z. B. Imazethapyr, Imazamethabenz, Imazapyr und Imazaquin; Nitrile, wie z. B. Bromoxynil, Dichlobenil und Ioxynil; Oxyacetamide, wie z. B. Mefena-

cet; Sulfonylharnstoffe, wie z. B. Amidosulfuron, Bensulfuron-methyl, Chlorsulfuron-ethyl, Chlorsulfuron, Cinosulfuron, Metsulfuronmethyl, Nicosulfuron, Primisulfuron, Pyrazosulfuron-ethyl, Thifensulfuron-methyl, Triasulfuron und Tribenuron-methyl; Thiolcarbamate, wie z. B. Butylate, Cycloate, Diallate, EPTC, Esprocarb, Molinate, Prosulfocarb, Thiobencarb und Triallate; Triazine, wie z. B. Atrazin, Cyanazin, Simazin, Simetryne, Terbutryne und Terbutylazin; Triazinone, wie z. B. Hexazinon, Metamitron und Metribuzin; Sonstige, wie z. B. Aminotriazol, Benfuresate, Bentazone, Cinnethylin, Clomazone, Clopyralid, Difenzoquat, Dithiopyr, Ethofumesate, Fluorchloridone, Glufosinate, Glyphosate, Isoxaben, Pyridate, Quinchlorac, Quinmerac, Sulphosate und Tridiphane.

Auch eine Mischung mit anderen bekannten Wirkstoffen, wie Fungiziden, Insektiziden, Akariziden, Nematiziden, Schutzstoffen gegen Vogelfraß, Pflanzennährstoffen und Bodenstrukturverbesserungsmitteln ist möglich.

Die Wirkstoffe können als solche, in Form ihrer Formulierungen oder den daraus durch weiteres Verdünnen bereiteten Anwendungsformen, wie gebrauchsfertige Lösungen, Suspensionen, Emulsionen, Pulver, Pasten und Granulate angewandt werden. Die Anwendung geschieht in üblicher Weise, z. B. durch Gießen, Spritzen, Sprühen, Streuen.

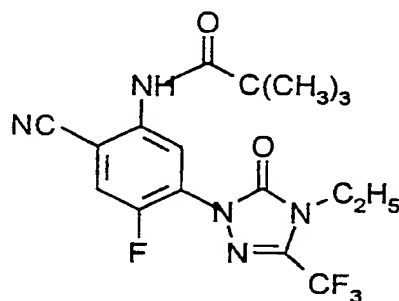
Die erfindungsgemäßen Wirkstoffe können sowohl vor als auch nach dem Auflaufen der Pflanzen appliziert werden. Sie können auch vor der Saat in den Boden eingearbeitet werden.

Die angewandte Wirkstoffmenge kann in einem größeren Bereich schwanken. Sie hängt im wesentlichen von der Art des gewünschten Effektes ab. Im allgemeinen liegen die Aufwandmengen zwischen 10 g und 10 kg Wirkstoff pro Hektar Bodenfläche, vorzugsweise zwischen 50 g und 5 kg pro ha.

Die Herstellung und die Verwendung der erfindungsgemäßen Wirkstoffe geht aus den nachfolgenden Beispielen hervor.

Herstellungsbeispiele

Beispiel 1

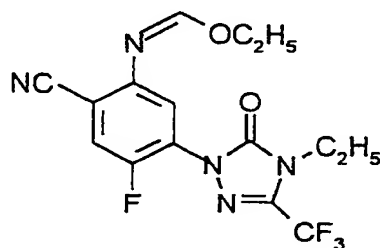


(Verfahren (a))

3,15 g (0,01 Mol) 2-(2-Fluor-4-cyano-5-amino-phenyl)-4-ethyl-5-trifluormethyl-2,4-dihydro-3H-1,2,4-triazol-3-on werden in 50 ml Acetonitril mit 1,01 g (0,01 Mol) Triethylamin vorgelegt und unter Rühren mit 1,21 g (0,01 Mol) Trimethylelessigsäurechlorid versetzt, 5 Stunden bei Raumtemperatur (20°C) gerührt und eingengt. Der Rückstand wird mit Wasser verrührt, abgesaugt und über eine Kieselsäure (Laufmittel: Cyclohexan/Essigsäure-ethylester 3 : 1) gereinigt.

Man erhält 1,7 g (43% der Theorie) 2-[2-Fluor-4-cyano-5-(tert-butyl-carbonylamino)-phenyl]-4-ethyl-5-trifluormethyl-2,4-dihydro-3H-1,2,4-triazol-3-on vom Schmelzpunkt 149°C.

Beispiel 2

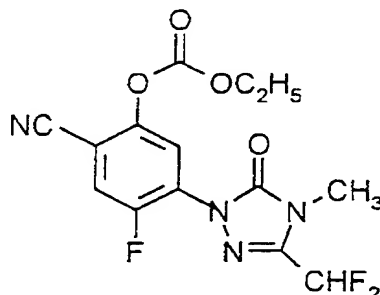


(Verfahren (a))

3,15 g (0,01 Mol) 2-(2-Fluor-4-cyano-5-amino-phenyl)-4-ethyl-5-trifluormethyl-2,4-dihydro-3H-1,2,4-triazol-3-on werden mit 0,01 g p-Toluolsulfonsäure in 20 ml Orthoameisensäure-triethylester 20 Minuten bei Rückflußtemperatur gerührt. Die erkaltete Lösung wird eingengt und aus wenig Isopropanol umkristallisiert.

Man erhält 2 g (54% der Theorie) 2-[2-Fluor-4-cyano-5-(ethoxycarbonyloxy)phenyl]-4-ethyl-5-trifluormethyl-2,4-dihydro-3H-1,2,4-triazol-3-on vom Schmelzpunkt 91°C.

Beispiel 3



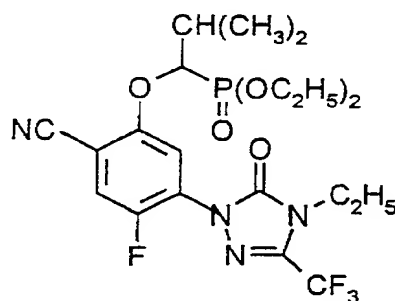
(Verfahren (b))

2 g (0,007 Mol) 2-(2-Fluor-4-cyano-5-hydroxy-phenyl)-4-methyl-5-difluormethyl-2,4-dihydro-3H-1,2,4-triazol-3-on werden in 50 ml Acetonitril mit 0,23 g (0,0077 Mol) Natriumhydrid (80%ig in Paraffin) versetzt, 20 Minuten bei 20°C gerührt; anschließend werden 0,84 g (0,0077 Mol) Chlorameisensäure-ethylester zugegeben und 8 Stunden bei Raumtemperatur (20°C) gerührt. Nach dem Einengen wird mit Wasser verrührt, mit konzentrierter Salzsäure angesäuert, dreimal mit Dichlormethan extrahiert, die organische Phase über Natriumsulfat getrocknet und eingeeengt. Zur Reinigung chromatographiert man über Kieselgel (Laufmittel: Cyclohexan/Essigsäureethylester 1:1).

Man erhält 0,8 g (32% der Theorie) 2-[2-Fluor-4-cyano-5-(ethoxy-carbonyloxy)phenyl]-4-methyl-5-difluormethyl-2,4-dihydro-3H-1,2,4-triazol-3-on als Öl.

¹H-NMR (CDCl₃): 3,50; 4,35-4,43; 7,55-7,58 ppm

Beispiel 4



(Verfahren (c))

6,3 g (0,03 Mol) 1-Hydroxy-iso-butyl-phosphonsäurediethylester werden in 100 ml Acetonitril mit 0,9 g (0,03 Mol) Natriumhydrid (80%ig in Paraffin) versetzt und 20 Minuten bei 20°C gerührt. Nach Zugabe von 3,15 g (0,01 Mol) 2-(2,5-Difluor-4-cyanophenyl)-4-ethyl-5-trifluormethyl-2,4-dihydro-3H-1,2,4-triazol-3-on werden 12 Stunden bei Raumtemperatur (20°C) gerührt. Die Mischung verrührt man mit Wasser, saugt das ausgefallene Produkt ab und kristallisiert aus Cyclohexan um.

Man erhält 3 g (59% der Theorie) 2-[2-Fluor-4-cyano-5-(1-diethoxyphosphoryl-isobutoxy-phenyl)-4-ethyl-5-trifluormethyl-2,4-dihydro-3H-1,2,4-triazol-3-on vom Schmelzpunkt 113°C.

Analog zu den Beispielen 1 bis 4 sowie entsprechend der allgemeinen Beschreibung der erfindungsgemäßen Herstellungsverfahren können beispielsweise auch die in der nachstehenden Tabelle 1 aufgeführten Verbindungen der Formel (I) hergestellt werden.

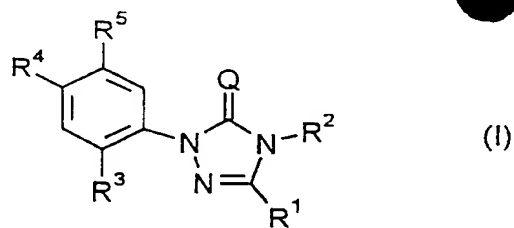


Tabelle 1




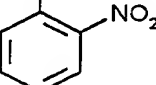
Beispiele für die Verbindungen der Formel (I)

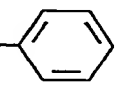

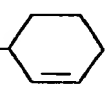
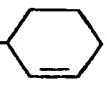
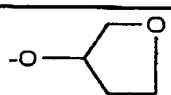
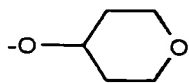
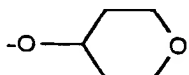
Bsp.- Nr.	R ¹	R ²	R ³	R ⁴	R ⁵	Q	physikalische Eigenschaften
5	CF ₃	CH ₃	F	CN	NH-CO-C ₂ H ₅	O	Fp.: 132°C
6	CF ₃	C ₂ H ₅	F	CN		O	Fp.: 107°C (Zers.)
7	CF ₃	CH ₃	F	CN		O	Fp.: 123°C
8	CF ₃	C ₂ H ₅	F	CN	NH-COCF ₃	O	Fp.: 146°C
9	CF ₃	CH ₃	F	CN	NH-COCH ₃	O	Fp.: 155°C
10	CF ₃	CH ₃	F	CN	NH-COCH(CH ₃) ₂	O	¹ H-NMR (CDCl ₃ , δ): = 1,14; 2,67; 3,36; 7,81; 8,15; 10,27

Bsp.- Nr.	R ¹	R ²	R ³	R ⁴	R ⁵	Q	physikalische Eigenschaften	
11	CF ₃	C ₂ H ₅	F	CN	NH-COCOC(CH ₃) ₃	O	Fp.: 176°C	5
12	CF ₃	C ₂ H ₅	F	CN	NH-CO-NH ₂	O	Fp.: >250°C	10
13	CF ₃	CH ₃	F	CN	$\begin{array}{c} \text{CH}_3 \\ \diagup \\ \text{N} \\ \diagdown \\ \text{COCF}_3 \end{array}$	S	¹ H-NMR (CDCl ₃ , δ): 3,36, 3,70	15
14	CF ₃	CH ₃	F	CN	N(COCH ₃) ₂	O	¹ H-NMR (CDCl ₃ , δ): 2,27; 3,38; 8,06; 8,38	20
15	CF ₃	C ₂ H ₅	F	CN	NH-COCH ₃	O	Fp.: 169°C	25
16	CF ₃	C ₂ H ₅	F	CN	$\begin{array}{c} \text{CH}_3 \\ \diagup \\ \text{NH-COCH} \\ \diagdown \\ \text{Cl} \end{array}$	O	¹ H-NMR (CDCl ₃ , δ): 1,85-1,8; 3,90- 3,98; 8,93-8,9	30
17	CF ₃	C ₂ H ₅	F	CN	NH-COC(CH ₃) ₂ CH ₂ Cl	O	Fp.: 149°C	35
18	CF ₃	C ₂ H ₅	F	CN	NH-COCH ₂ -Cl	O	Fp.: 121°C	40
19	CF ₃	C ₂ H ₅	F	CN	N(COCH ₃) ₂	O	Fp.: 112°C (Zers.)	45
20	CHF ₂	C ₂ H ₅	Cl	CN	$\text{NH-CO}-\text{C}_6\text{H}_4-\text{Cl}$	S		50
21	CHF ₂	CH ₃	F	CN	NH-CO-NH ₂	O		55
22	CHF ₂	CH ₃	F	NO ₂	N(COCH ₃) ₂	O		60
23	CF ₃	CH ₃	F	NO ₂	NH-COC(CH ₃) ₃	O		65

Bsp.- Nr.	R ¹	R ²	R ³	R ⁴	R ⁵	Q	physikalische Eigenschaften
--------------	----------------	----------------	----------------	----------------	----------------	---	--------------------------------

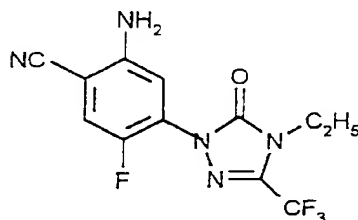
5	24	CHF ₂	CH ₃	F	CN	N=CH-OC ₂ H ₅	O	Fp.: 149°C
10	25	CF ₃	C ₂ H ₅	F	CN	$\begin{array}{c} \text{CH}_3 \\ \diagup \\ \text{N}=\text{C} \\ \diagdown \\ \text{OC}_2\text{H}_5 \end{array}$	O	¹ H-NMR (CDCl ₃ , δ): 1,95; 3,90-3,96; 7,12-7,15
15	26	CF ₃	C ₂ H ₅	F	CN	N=C(OCH ₃) ₂	O	Fp.: 139°C
	27	CF ₃	C ₂ H ₅	F	CN	N-CH-N(CH ₃) ₂	O	
	28	CF ₃	CH ₃	Cl	CN	N=C(OCH ₃) ₂	O	
20	29	CF ₃	CH ₃	F	CN	N=C(OC ₂ H ₅) ₂	S	
	30	CF ₃	C ₂ H ₅	F	NO ₂	N=CH-OC ₂ H ₅	O	
25	31	CHF ₂	CH ₃	F	CN	$\begin{array}{c} \text{CH}_3 \\ \diagup \\ \text{N}=\text{C} \\ \diagdown \\ \text{OC}_2\text{H}_5 \end{array}$	S	
30	32	CF ₃	C ₂ H ₅	F	CN	-OCOOC ₂ H ₅	O	¹ H-NMR (CDCl ₃ , δ): 3,90-4,00; 4,35- 4,45; 7,58-7,60
35	33	CF ₃	CH ₃	F	CN	-OCOOCH ₂ -CH ₂ -Cl	O	
	34	CHF ₂	CH ₃	Cl	CN	-OCOOC ₂ H ₅	O	
40	35	CF ₃	CH ₃	F	NO ₂	-OCOOC ₂ H ₅	O	
	36	CF ₃	C ₂ H ₅	F	CN	-OCOOC ₂ H ₅	S	
45	37	CF ₃	C ₂ H ₅	F	CN	-OCH ₂ -PO(OC ₂ H ₅) ₂	O	Fp.: 89°C

Bsp.- Nr.	R ¹	R ²	R ³	R ⁴	R ⁵	Q	physikalische Eigenschaften	
38	CF ₃	CH ₃	F	CN	-OCH ₂ -PO(OC ₂ H ₅) ₂	O		5
39	CF ₃	CH ₃	F	CN	-OCH-PO(OC ₂ H ₅) ₂ CH ₃	O		10
40	CHF ₂	CH ₃	F	CN	-OCH-PO(OC ₂ H ₅) ₂ CH ₃	O		15
41	CF ₃	C ₂ H ₅	F	CN	-OCH-PO(OC ₂ H ₅) ₂ CH ₃	O	Fp.: 90°C	20
42	CF ₃	C ₂ H ₅	F	CN	-OCH-PO(OC ₂ H ₅) ₂ 	O		25
43	CF ₃	C ₂ H ₅	F	CN	-OCH-PO(OC ₂ H ₅) ₂ 	O		30
44	CF ₃	C ₂ H ₅	F	CN	-OCH-PO(OC ₂ H ₅) ₂ 	O		35
45	CF ₃	C ₂ H ₅	F	CN	-OCH-PO(OC ₂ H ₅) ₂ 	O		40
46	CF ₃	CH ₃	F	CN	-NH-CO-C ₂ H ₅	O		45
47	CF ₃	C ₂ H ₅	F	CN	N=CH-N(CH ₃) ₂	O	Fp.: 155°C	50

	Bsp.- Nr.	R ¹	R ²	R ³	R ⁴	R ⁵	Q	physikalische Eigenschaften
5	48	CF ₃	C ₂ H ₅	F	CN	NH-COOC ₂ H ₅	O	Fp.: 112°C
	49	CF ₃	C ₂ H ₅	F	CN	NH-COCOOC ₂ H ₅	O	Fp.: 133°C
	50	CF ₃	C ₂ H ₅	F	CN	NH-CHO	O	Fp.: 156°C
10	51	CF ₃	CH ₃	F	NO ₂	NH-COCF ₃	O	
	52	CHF ₂	CH ₃	Cl	CN	N(COCH ₃) ₂	O	
15	53	CF ₃	CH ₃	F	CN	NH-CO- 	O	
20	54	CF ₃	CH ₃	F	CN	-SCN	O	n _D ²⁰ = 1,5221
	55	CF ₃	CH ₃	F	CN	-SO ₂ Cl	O	Fp.: 205°C
	56	CF ₃	CH ₃	F	CN	-O-N= 	O	Fp.: 53°C
25								
	57	CF ₃	CH ₃	F	CN	-O-N(C ₂ H ₅) ₂	S	(amorph)
30	58	CF ₃	CH ₃	F	CN	-O-N(C ₂ H ₅) ₂	O	Fp.: 78°C
	59	CF ₃	CH ₃	F	CN	-O- 	S	¹ H-NMR (CDCl ₃ , d): 1,5-2,3; 3,70; 5,0; 5,85; 6,05; 7,75; 8,15
35								
40	60	CF ₃	CH ₃	F	CN	-O- 	O	Fp.: 66°C
45	Bsp.- Nr.	R ¹	R ²	R ³	R ⁴	R ⁵	Q	physikalische Eigenschaften
50	61	CF ₃	CH ₃	F	CN	-O- 	O	Fp.: 86°C
55	62	CF ₃	CH ₃	F	CN	-O- 	S	¹ H-NMR (CDCl ₃ , δ): 1,65; 2,0; 3,5; 3,70; 3,85; 4,75; 7,75; 8,2
60	63	CF ₃	CH ₃	F	CN	-O- 	O	Fp.: 128°C
65								

Ausgangsstoffe der Formel (II)

Beispiel (II-1)

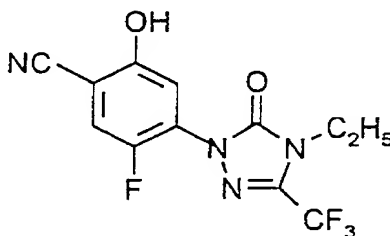


9,54 g (0,03 Mol) 2-(2,5-Difluor-4-cyano-phenyl)-4-ethyl-5-trifluormethyl-2,4-dihydro-3H-1,2,4-triazol-3-on werden in 150 ml Dimethylsulfoxid auf 120°C erwärmt und 20 Stunden Ammoniak-Gas eingeleitet. Die erkaltete Lösung wird auf Eiswasser gerührt, ausgefallenes Produkt abgesaugt, mit Wasser gewaschen und der Rückstand aus Isopropanol umkristallisiert.

Man erhält 5,8 g (61% der Theorie) 2-(2-Fluor-4-cyano-5-amino-phenyl)-4-ethyl-5-trifluormethyl-2,4-dihydro-3H-1,2,4-triazol-3-on vom Schmelzpunkt 193°C.

Ausgangsstoffe der Formel (V)

Beispiel (V-1)

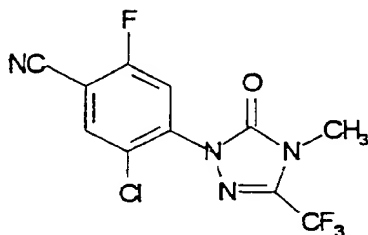


4,95 g (0,015 Mol) 2-(2-Fluor-4-cyano-5-methoxy-phenyl)-4-ethyl-5-trifluormethyl-2,4-dihydro-3H-1,2,4-triazol-3-on werden in 200 ml Methylenchlorid bei 10°C vorgelegt und tropfenweise mit einer einmolaren Lösung von 45 g (0,045 Mol) Bor(III)-bromid in Methylenchlorid versetzt. Das Reaktionsgemisch wird 12 Stunden bei 20°C gerührt und dann mit 100 ml Wasser versetzt. Nach zehnmütigem Rühren wird die organische Phase abgetrennt, mit Wasser gewaschen, mit Natriumsulfat getrocknet und filtriert. Vom Filtrat wird das Lösungsmittel im Wasserstrahlvakuum sorgfältig abdestilliert.

Man erhält 3,1 g (65% der Theorie) 2-(2-Fluor-4-cyano-5-hydroxy-phenyl)-4-ethyl-5-trifluormethyl-2,4-dihydro-3H-1,2,4-triazol-3-on vom Schmelzpunkt 195°C.

Ausgangsstoffe der Formel (VII)

Beispiel (VII-1)



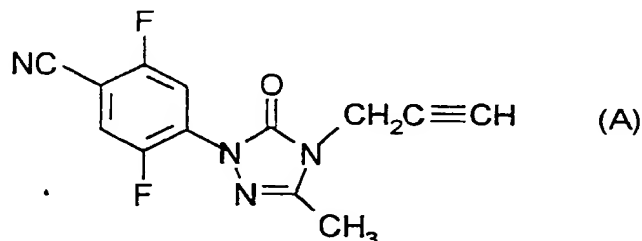
Zu 5,3 g (0,032 Mol) 4-Methyl-5-trifluormethyl-2,4-dihydro-3H-1,2,4-triazol-3-on (vgl. z. B. US 3.780.052) und 5,5 g (0,032 Mol) 5-Chlor-2,4-difluorbenzonitril in 100 ml Dimethylsulfoxid gibt man bei Raumtemperatur 5,3 g (0,038 Mol) Kaliumcarbonat und erwärmt anschließend für 36 Stunden auf 100°C. Zur Aufarbeitung wird die abgekühlte Reaktionsmischung in Wasser gegeben, mit verdünnter Salzsäure auf pH 2 gebracht und mehrfach

mit Dichlormethan extrahiert. Die vereinigten organischen Phasen werden über Natriumsulfat getrocknet und im Vakuum eingedunstet. Der Rückstand wird über Kieselgel (Laufmittel: Dichlormethan) chromatographiert.

Man erhält 1,8 g (18% der Theorie) 2-(2-Chlor-4-cyano-5-fluor-phenyl)-4-methyl-5-trifluormethyl-2,4-dihydro-3H-1,2,4-triazolin-3-on vom Schmelzpunkt 105°C.

Anwendungsbeispiele

In den Anwendungsbeispielen wird die folgende Verbindung (A) als Vergleichssubstanz herangezogen:



2-(4-Cyano-2,5-difluor-phenyl)-5-methyl-4-propargyl-2,4-dihydro-3H-1,2,4-triazol-3-on (bekannt aus EP-A 370332).

Beispiel A

Pre-emergence-Test

Lösungsmittel: 5 Gew.-Teile Aceton

Emulgator: 1 Gew.-Teil Alkylarylpolyglykolether

Zur Herstellung einer zweckmäßigen Wirkstoffzubereitung vermischt man 1 Gewichtsteil Wirkstoff mit der angegebenen Menge Lösungsmittel, gibt die angegebene Menge Emulgator zu und verdünnt das Konzentrat mit Wasser auf die gewünschte Konzentration.

Samen der Testpflanzen werden in normalen Boden ausgesät und nach 24 Stunden mit der Wirkstoffzubereitung begossen. Dabei hält man die Wassermenge pro Flächeneinheit zweckmäßigerweise konstant. Die Wirkstoffkonzentration in der Zubereitung spielt keine Rolle, entscheidend ist nur die Aufwandmenge des Wirkstoffs pro Flächeneinheit. Nach drei Wochen wird der Schädlingsgrad der Pflanzen bonitiert in % Schädigung im Vergleich zur Entwicklung der unbehandelten Kontrolle. Es bedeuten:

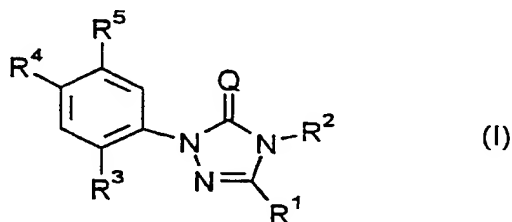
0% = keine Wirkung (wie unbehandelte Kontrolle)

100% = totale Vernichtung

Eine deutliche Überlegenheit in der Wirksamkeit gegenüber dem Stand der Technik zeigen in Gerste (0–10%) und Weizenkulturen (0%) in diesem Test z. B. die Verbindungen gemäß der Herstellungsbeispiele 4, 13, 17, 25, 26, 37 und 41 gegenüber Unkräutern wie Digitaria (80–95%), Abutilon (100%), Chenopodium (95–100%), Galinsoga (70–100%), Matricaria (60–100%), Protulaca (70–100%), Solanum (80–100%) und Viola (80–100%).

Patentansprüche

1. Neue substituierte Triazolinone der allgemeinen Formel (I)



in welcher

Q für Sauerstoff oder Schwefel steht,

R¹ für Halogenalkyl steht,

R² für Wasserstoff, Amino, Cyano, Alkyl, Alkenyl, Alkynyl, Halogenalkyl, Halogenalkenyl, Halogenalkinyl, Alkoxyalkyl, Alkylidenimino oder für jeweils gegebenenfalls substituiertes Cycloalkyl oder Cycloalkylalkyl

- steht,
 R^3 für Wasserstoff oder Halogen steht,
 R^4 für Cyano oder Nitro steht, und
 R^5 für Isocyano, Thiocyanato, Sulfo, Halogensulfonyl, Alkylaminooxy, Dialkylaminooxy, Alkylidenaminooxy, Cycloalkylidenaminooxy, für jeweils gegebenenfalls substituiertes Cycloalkenyloxy oder Heterocycloxy, oder für eine der nachstehenden über Stickstoff oder Sauerstoff gebundenen Gruppierungen steht
 $-NR^6R^7$, $N=CR^8R^9$, $-O-CO-R^{10}$, $-O-CHR^{11}-P(O)(OR^{12})_2$ wobei
 R^6 für Wasserstoff, für jeweils gegebenenfalls durch Halogen substituiertes Alkyl, Alkenyl oder Alkynyl, oder für die Gruppierung $-CO-R^{13}$ steht, worin
 R^{13} für Wasserstoff, für jeweils gegebenenfalls durch Halogen oder Alkoxy substituiertes Alkyl oder Alkoxy, für Amino, Alkylamino oder Dialkylamino, oder für jeweils gegebenenfalls substituiertes Cycloalkyl, Cycloalkylalkyl, Aryl, Arylalkyl oder Heterocyclylalkyl steht,
 R^7 für die Gruppierung $(CO)_n-R^{13}$ steht, worin
 R^{13} die oben angegebene Bedeutung hat und
 n für die Zahlen 1 oder 2 steht,
 R^8 für Wasserstoff, Alkyl oder Alkoxy steht,
 R^9 für Alkoxy, Alkylamino oder Dialkylamino steht,
 R^{10} für gegebenenfalls durch Halogen substituiertes Alkyl, für Alkoxy, für Alkylamino oder für gegebenenfalls substituiertes Aryl steht,
 R^{11} für jeweils gegebenenfalls durch Halogen substituiertes Alkyl oder Cycloalkyl oder für jeweils gegebenenfalls substituiertes Aryl oder Heterocyclyl steht, und
 R^{12} für Alkyl steht.
2. Neue substituierte Triazolinone der allgemeinen Formel (I) gemäß Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, daß
 Q für Sauerstoff oder Schwefel steht,
 R^1 für geradkettiges oder verzweigtes Halogenalkyl mit 1 bis 6 Kohlenstoffatomen und 1 bis 13 gleichen oder verschiedenen Halogenatomen — insbesondere Fluor, Chlor, Brom oder Iod — steht,
 R^2 für Wasserstoff, Amino, Cyano, für geradkettiges oder verzweigtes Alkyl mit 1 bis 8 Kohlenstoffatomen, für jeweils geradkettiges oder verzweigtes Alkenyl oder Alkynyl mit jeweils 2 bis 6 Kohlenstoffatomen, für geradkettiges oder verzweigtes Halogenalkyl mit 1 bis 6 Kohlenstoffatomen und 1 bis 13 gleichen oder verschiedenen Halogenatomen — insbesondere Fluor, Chlor, Brom oder Iod —, für jeweils geradkettiges oder verzweigtes Halogenalkenyl oder Halogenalkynyl mit jeweils 2 bis 6 Kohlenstoffatomen und 1 bis 11 gleichen oder verschiedenen Halogenatomen — insbesondere Fluor, Chlor, Brom oder Iod —, für geradkettiges oder verzweigtes Alkoxyalkyl mit jeweils 1 bis 4 Kohlenstoffatomen in den einzelnen Alkylteilen, für geradkettiges oder verzweigtes Alkylidenimino mit 1 bis 8 Kohlenstoffatomen oder für jeweils gegebenenfalls im Cycloalkylteil einfach oder mehrfach, gleich oder verschieden durch Halogen — insbesondere Fluor, Chlor, Brom und/oder Iod — substituiertes Cycloalkyl oder Cycloalkylalkyl mit jeweils 3 bis 8 Kohlenstoffatomen im Cycloalkylteil und gegebenenfalls 1 bis 4 Kohlenstoffatomen im geradkettigen oder verzweigten Alkylteil steht,
 R^3 für Wasserstoff, Fluor, Chlor, Brom oder Iod steht,
 R^4 für Cyano oder Nitro steht, und
 R^5 für Isocyano, Thiocyanato, Sulfo, Halogensulfonyl, C_1-C_6 -Alkylaminooxy, $Di(C_1-C_4\text{-alkyl})$ -aminooxy, C_1-C_6 -Alkylidenaminooxy oder C_5-C_6 -Cycloalkylidenaminooxy, für jeweils gegebenenfalls durch Halogen, C_1-C_4 -Alkyl oder C_1-C_4 -Alkoxy substituiertes C_5-C_6 -Cycloalkenyloxy, Perhydrofuranyloxy oder Perhydropyranyloxy, oder für eine der nachstehenden über Stickstoff oder Sauerstoff gebundenen Gruppierungen steht
 $-NR^6R^7$, $N=CR^8R^9$, $-O-CO-R^{10}$, $-O-CHR^{11}-P(O)(OR^{12})_2$ wobei
 R^6 für Wasserstoff, für jeweils gegebenenfalls durch Fluor und/oder Chlor substituiertes Alkyl, Alkenyl oder Alkynyl mit jeweils bis zu 6 Kohlenstoffatomen oder für die Gruppierung $-CO-R^{13}$ steht, worin
 R^{13} für Wasserstoff, für jeweils gegebenenfalls durch Fluor, Chlor oder C_1-C_4 -Alkoxy substituiertes Alkyl oder Alkoxy mit jeweils 1 bis 6 Kohlenstoffatomen, für Amino, für Alkylamino oder Dialkylamino mit jeweils 1 bis 6 Kohlenstoffatomen in den Alkylteilen, oder für jeweils gegebenenfalls substituiertes C_3-C_6 -Cycloalkyl, C_3-C_6 -Cycloalkyl- C_1-C_4 -alkyl, Phenyl, Naphthyl, Phenyl- C_1-C_4 -alkyl, Furyl, Thienyl oder Pyridyl steht, wobei jeweils als Substituenten in Frage kommen:
Halogen, Cyano, Nitro, jeweils geradkettiges oder verzweigtes Alkyl, Alkoxy, Alkylthio, Alkylsulfinyl oder Alkylsulfonyl mit jeweils 1 bis 4 Kohlenstoffatomen, jeweils geradkettiges oder verzweigtes Halogenalkyl, Halogenalkoxy, Halogenalkylthio, Halogenalkylsulfinyl oder Halogenalkylsulfonyl mit jeweils 1 bis 4 Kohlenstoffatomen und 1 bis 9 gleichen oder verschiedenen Halogenatomen, jeweils geradkettiges oder verzweigtes Alkoxy-carbonyl oder Alkoxyiminoalkyl mit jeweils 1 bis 4 Kohlenstoffatomen in den einzelnen Alkylteilen sowie gegebenenfalls einfach oder mehrfach, gleich oder verschieden durch Halogen und/oder geradkettiges oder verzweigtes Alkyl oder Alkoxy mit jeweils 1 bis 4 Kohlenstoffatomen und/oder geradkettiges oder verzweigtes Halogenalkyl oder Halogenalkoxy mit jeweils 1 bis 4 Kohlenstoffatomen und 1 bis 9 gleichen oder verschiedenen Halogenatomen substituiertes Phenyl;
 R^7 für die Gruppierung $-(CO)_n-R^{13}$ steht, worin
 R^{13} die oben als bevorzugt angegebene Bedeutung hat und
 n für die Zahlen 1 oder 2 steht,
 R^8 für Wasserstoff oder für Alkyl oder Alkoxy mit jeweils 1 bis 6 Kohlenstoffatomen steht,
 R^9 für Alkoxy, Alkylamino oder Dialkylamino, jeweils mit 1 bis 6 Kohlenstoffatomen in den Alkylgruppen

steht,

R¹⁰ für gegebenenfalls durch Fluor und/oder Chlor substituiertes Alkyl mit 1 bis 6 Kohlenstoffatomen, für Alkoxy oder Alkylamino mit jeweils 1 bis 6 Kohlenstoffatomen oder für gegebenenfalls substituiertes Phenyl steht, wobei die oben unter R⁶ als bevorzugt angegebenen Phenylsubstituenten auch hier vorzugsweise in Frage kommen,

R¹¹ für jeweils gegebenenfalls durch Fluor und/oder Chlor substituiertes Alkyl mit 1 bis 6 Kohlenstoffatomen oder Cycloalkyl mit 3 bis 6 Kohlenstoffatomen oder für jeweils gegebenenfalls substituiertes Phenyl, Naphthyl, Furyl, Thienyl oder Pyridyl steht, wobei auch hier die oben unter R⁶ als bevorzugt angegebenen Phenylsubstituenten vorzugsweise in Frage kommen und

R¹² für Alkyl mit 1 bis 6 Kohlenstoffatomen steht.

3. Neue substituierte Triazolinone der allgemeinen Formel (I) gemäß Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, daß

Q für Sauerstoff oder Schwefel steht,

R¹ für geradkettiges oder verzweigtes Halogenalkyl mit 1 bis 4 Kohlenstoffatomen und 1 bis 9 gleichen oder verschiedenen Halogenatomen — insbesondere Fluor, Chlor, Brom oder Iod — steht,

R² für Wasserstoff, Amino, Cyano, für geradkettiges oder verzweigtes Alkyl mit 1 bis 4 Kohlenstoffatomen, für jeweils geradkettiges oder verzweigtes Alkenyl oder Alkynyl mit jeweils 3 bis 4 Kohlenstoffatomen, für geradkettiges oder verzweigtes Halogenalkyl mit 1 bis 4 Kohlenstoffatomen und 1 bis 9 gleichen oder verschiedenen Halogenatomen — insbesondere Fluor oder Chlor —, für jeweils geradkettiges oder verzweigtes Halogenalkenyl oder Halogenalkinyl mit jeweils 3 bis 4 Kohlenstoffatomen und 1 bis 5 gleichen oder verschiedenen Halogenatomen — insbesondere Fluor oder Chlor —, für geradkettiges oder verzweigtes Alkoxyalkyl mit jeweils 1 bis 3 Kohlenstoffatomen in den einzelnen Alkylteilen, für geradkettiges oder verzweigtes Alkylidenimino mit 1 bis 4 Kohlenstoffatomen oder für jeweils gegebenenfalls im Cycloalkylteil einfach oder mehrfach, gleich oder verschieden durch Halogen — insbesondere Fluor oder Chlor — substituiertes Cycloalkyl oder Cycloalkylalkyl mit jeweils 3 bis 6 Kohlenstoffatomen im Cycloalkylteil und gegebenenfalls 1 bis 3 Kohlenstoffatomen im geradkettigen oder verzweigten Alkylteil steht,

R³ für Wasserstoff, Fluor oder Chlor steht,

R⁴ für Cyano oder Nitro steht, und

R⁵ für Isocyano, Thiocyanato, Sulfo, Chlorsulfonyl, C₁—C₄-Alkylaminooxy, Di-(C₁—C₃-alkyl)-aminooxy, C₁—C₄-Alkyliden-aminooxy, C₅—C₆-Cycloalkylidenaminooxy, C₅—C₆-Cycloalkenyloxy, Tetrahydrofuran-oxo, Perhydro-pyran-oxo, oder für eine der nachstehenden über Stickstoff oder Sauerstoff gebundenen Gruppierungen steht

—NR⁶R⁷, —N=CR⁸R⁹, —O—CO—R¹⁰, —O—CHR¹, —P(O)(OR¹²)₂, wobei

R⁶ für Wasserstoff, für gegebenenfalls durch Fluor substituiertes Alkyl mit 1 bis 4 Kohlenstoffatomen oder die Gruppierung —CO—R¹³ steht, worin

R¹³ für Wasserstoff, für jeweils gegebenenfalls durch Fluor, Chlor, Methoxy oder Ethoxy substituiertes Alkyl oder Alkoxy mit jeweils 1 bis 4 Kohlenstoffatomen, für Amino, für Alkylamino oder Dialkylamino mit jeweils 1 bis 4 Kohlenstoffatomen in den Alkylteilen, oder für jeweils gegebenenfalls substituiertes Cyclopropyl, Cyclopentyl, Cyclohexyl, Cyclopropylmethyl, Cyclopentylmethyl, Cyclohexylmethyl, Phenyl, Benzyl, Phenylethyl, Furyl, Thienyl oder Pyridyl steht, wobei jeweils als Substituenten in Frage kommen:

Fluor, Chlor, Brom, Cyano, Nitro, jeweils geradkettiges oder verzweigtes Alkyl, Alkoxy, Alkylthio, Alkylsulfinyl oder Alkylsulfonyl mit jeweils bis 4 Kohlenstoffatomen, jeweils geradkettiges oder verzweigtes Halogenalkyl, Halogenalkoxy, Halogenalkylthio, Halogenalkylsulfinyl oder Halogenalkylsulfonyl mit jeweils 1 bis 4 Kohlenstoffatomen und 1 bis 9 gleichen oder verschiedenen Halogenatomen — insbesondere Fluor- und/oder Chloratomen, jeweils geradkettiges oder verzweigtes Alkoxy-carbonyl oder Alkoxyiminoalkyl mit jeweils 1 bis 4 Kohlenstoffatomen in den einzelnen Alkylteilen sowie gegebenenfalls einfach oder mehrfach, gleich oder verschieden durch Fluor, Chlor, Brom und/oder geradkettiges oder verzweigtes Alkyl oder Alkoxy mit jeweils 1 bis 4 Kohlenstoffatomen und/oder geradkettiges oder verzweigtes Halogenalkyl oder Halogenalkoxy mit jeweils 1 bis 4 Kohlenstoffatomen und 1 bis 9 gleichen oder verschiedenen Halogenatomen — insbesondere Fluor- und/oder Chloratomen substituiertes Phenyl;

R⁷ für die Gruppierung —(CO)_n—R¹³ steht, worin

R¹³ die oben als insbesondere bevorzugt angegebene Bedeutung hat und

n für die Zahlen 1 oder 2 steht,

R⁸ für Wasserstoff oder für Alkyl oder Alkoxy mit jeweils 1 bis 4 Kohlenstoffatomen steht,

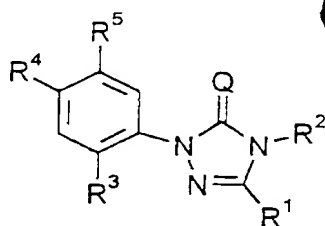
R⁹ für Alkoxy, Alkylamino oder Dialkylamino mit jeweils 1 bis 4 Kohlenstoffatomen in den Alkylgruppen steht,

R¹⁰ für gegebenenfalls durch Fluor und/oder Chlor substituiertes Alkyl mit 1 bis 4 Kohlenstoffatomen, für Alkoxy oder Alkylamino mit jeweils 1 bis 4 Kohlenstoffatomen oder für gegebenenfalls substituiertes Phenyl steht, wobei die oben unter R⁶ als insbesondere bevorzugt angegebenen Phenylsubstituenten auch hier vorzugsweise in Frage kommen,

R¹¹ für jeweils gegebenenfalls durch Fluor und/oder Chlor substituiertes Alkyl mit 1 bis 4 Kohlenstoffatomen oder Cycloalkyl mit 3 bis 6 Kohlenstoffatomen oder für jeweils gegebenenfalls substituiertes Phenyl, Naphthyl, Furyl, Thienyl oder Pyridyl steht, wobei auch hier die oben unter R⁶ als besonders bevorzugt angegebenen Phenylsubstituenten vorzugsweise in Frage kommen und

R¹² für Alkyl mit 1 bis 4 Kohlenstoffatomen steht.

4. Verfahren zur Herstellung neuer substituierten Triazolinone der allgemeinen Formel (I)

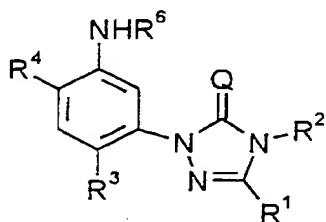


(I)

in welcher

R^1, R^2, R^3, R^4, R^5 und Q die in Anspruch 1 genannten Bedeutungen haben, dadurch gekennzeichnet, daß man

(a) Aminoaryltriazolinone der allgemeinen Formel (II)



(II)

in welcher

Q, R^1, R^2, R^3, R^4 und R^6 die oben angegebenen Bedeutungen haben, mit Säurehalogeniden der allgemeinen Formel (III)

$X^1 - (CO)_n - R^{13}$ (III)

in welcher

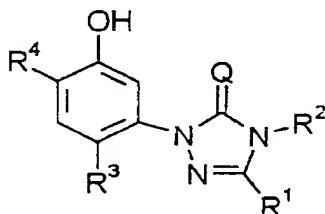
n und R^{13} die oben angegebene Bedeutung haben und X^1 für Halogen steht, oder mit Orthoestern der allgemeinen Formel (IV)

$R^8 - C(OR^9)_3$ (IV)

in welcher

R^8 und R^9 die oben angegebenen Bedeutungen haben, gegebenenfalls in Gegenwart eines Reaktionshilfsmittels und gegebenenfalls in Gegenwart eines Verdünnungsmittels umgesetzt, oder daß man

(b) Hydroxyaryltriazolinone der allgemeinen Formel (V)



(V)

in welcher

Q, R^1, R^2, R^3 und R^4 die oben angegebenen Bedeutungen haben, mit Säurehalogeniden der allgemeinen Formel (VI)

$X^2 - CO - R^{10}$ (VI)

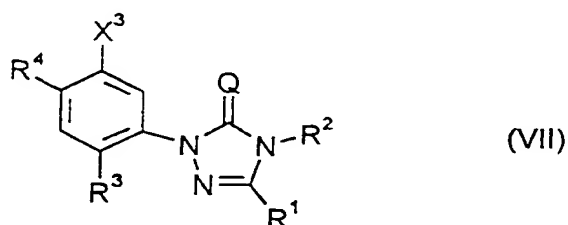
in welcher

R^{10} die oben angegebene Bedeutung hat und

X^2 für Halogen steht,

gegebenenfalls in Gegenwart eines Säureakzeptors und gegebenenfalls in Gegenwart eines Verdünnungsmittels umgesetzt,

oder daß man
(c) Halogenaryltr...none der allgemeinen Formel (VII)



in welcher
Q, R¹, R², R³ und R⁴ die oben angegebenen Bedeutungen haben und
X³ für Halogen steht,
mit Hydroxyalkylphosphonsäureestern der allgemeinen Formel (VIII)



in welcher
R¹, und R¹² die oben angegebenen Bedeutungen haben,
gegebenenfalls in Gegenwart eines Säureakzeptors und gegebenenfalls in
Gegenwart eines Verdünnungsmittels umgesetzt.

25 5. Herbizide Mittel, gekennzeichnet durch einen Gehalt an mindestens einem substituierten Triazolinon der allgemeinen Formel (I) gemäß der Ansprüche 1 bis 5.

6. Verfahren zur Bekämpfung von unerwünschten Pflanzen, dadurch gekennzeichnet, daß man substituierte Triazolinone der allgemeinen Formel (I) gemäß der Ansprüche 1 bis 5 auf Pflanzen und/oder ihren Lebensraum einwirken läßt.

7. Verwendung von substituierten Triazolinonen der allgemeinen Formel (I) gemäß der Ansprüche 1 bis 5 zur Bekämpfung von unerwünschten Pflanzen.

8. Verfahren zur Herstellung von herbiziden Mitteln, dadurch gekennzeichnet, daß man substituierte Triazolinone der allgemeinen Formel (I) gemäß der Ansprüche 1 bis 5 mit Streckmitteln und/oder oberflächenaktiven Substanzen vermischt.